

DOCKET NO.: 198487USXPCT

09/674498
422 Rec'd PCT/PTO 13 NOV 2000

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Ryuzo TOMOMATSU, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HEREWITH

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP00/01386

INTERNATIONAL FILING DATE: 08 March 2000

FOR: PROPYLENE-BASED RESIN COMPOSITION AND AUTOMOTIVE INTERIOR
TRIM

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

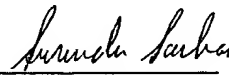
<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO.</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
JAPAN	11/63398	10 March 1999

A certified copy of the corresponding Convention application(s) was submitted to the International Bureau in PCT Application No. **PCT/JP00/01386**. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



22850


Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 1/97)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

09/674498

PCT/JP00/01386

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE

JAPANESE GOVERNMENT

JP00/01386

08.03.00

REC'D 28 APR 2000

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年 3月10日

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第063398号

出 願 人

Applicant(s):

出光石油化学株式会社
本田技研工業株式会社

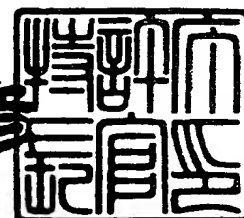
EU

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 4月14日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近 藤 隆 彦



出証番号 出証特2000-3025776

【書類名】 特許願

【整理番号】 IP2798

【提出日】 平成11年 3月10日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C08L 23/00

【発明の名称】 プロピレン系樹脂組成物及びそれを用いた自動車用内装部材

【請求項の数】 3

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1

 【氏名】 友松 龍蔵

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1

 【氏名】 松尾 陽一

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1

 【氏名】 鳴川 尚樹

【発明者】

 【住所又は居所】 埼玉県和光市中央 1 丁目 4 番 1 号 株式会社本田技術研究所内

 【氏名】 山田 哲史

【発明者】

 【住所又は居所】 埼玉県和光市中央 1 丁目 4 番 1 号 株式会社本田技術研究所内

 【氏名】 小田 哲也

【特許出願人】

 【識別番号】 000183657

 【氏名又は名称】 出光石油化学株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100078732

【弁理士】

【氏名又は名称】 大谷 保

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003171

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9717925

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 プロピレン系樹脂組成物及びそれを用いた自動車用内装部材

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A) (1) (イ) 23℃パラキシレン不溶分 78～88 重量%と、(ロ) 23℃パラキシレン可溶分 12～22 重量%とからなり、かつ (2) (イ) 成分が、アイソタクチックペンタッド分率 95%以上、溶液粘弾性測定から得られる角周波数 ω 10^0 /sec での緩和時間 τ が 0.01～0.35 秒、溶液粘弾性測定から得られる貯蔵弾性率 (G') が 2×10^2 Pa となるような角周波数を ω_1 、 2×10^4 Pa となるような角周波数を ω_2 としたときの $\omega_2 / 10 \omega_1$ で表される分子量分布指数 (PDI) が 1～1.8 であり、さらに (3) (ロ) 成分の極限粘度 $[\eta]$ (135℃、デカリン中) が 3.3 dl/g 以上、エチレン単位含有量が 43 重量%以下である、プロピレン系樹脂 60～90 重量%と、(B) ゴム状弾性体 0～10 重量%と、(C) タルク 10～30 重量%とを含有するプロピレン系樹脂組成物。

【請求項 2】 (ロ) 成分のエチレン単位含有量が 33～39 重量%である請求項 1 記載のプロピレン系樹脂組成物。

【請求項 3】 請求項 1 又は 2 に記載のプロピレン系樹脂組成物を射出成形してなる自動車用内装部材。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明はプロピレン系樹脂組成物及びこれを用いた自動車用インストルメントパネル等の自動車用内装部材に関し、さらに詳しくは、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好であり、かつ耐衝撃性、剛性等の機械的性能に優れ、なおかつこれらのバランスが良好なプロピレン系樹脂組成物、及びこれを用いた自動車用内装部材に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、インストルメントパネル等の自動車用内装部材においては、製品のコス

トダウンを目的とした無塗装化の進展に伴い、ウエルド外観等における良好な外観性能を有するとともに、光の反射を抑制しかつ落ち着き感を付与するなどの効果がある低光沢性に優れる内装部品の要求が急速に高まっている。また同時に安全対策、材料の低コスト化への要求レベルも厳しくなり、さらにはインストルメントパネルに用いられる材料の統合化が進んでいることに対応し、全インストルメントパネルの仕様を包含しうる耐衝撃性、剛性バランスに優れた材料が求められている。

従来、自動車用内装部品の材料としては、安価な汎用樹脂であるプロピレン系樹脂が多用されており、プロピレン系樹脂の耐衝撃性（常温アイソット衝撃強度）を向上させるために、スチレン系エストラマーを配合することが効果的であることが知られている。しかしながら、スチレン系エストラマーは高価である上、得られた成形材料の光沢度が高いなどの問題がある。

また、耐低温衝撃性に優れた成形材料として、例えば結晶性プロピレンーエチレンブロック共重合体に、メタロセン系触媒を用いて得られたエチレンー α -オレフィン共重合体を配合した樹脂組成物（特開平7-145272号公報、特開平7-145298号公報）、プロピレン系樹脂に、ブテンー1単位含有量の比較的多いエチレンーブテンー1共重合体（実質上メタロセン系触媒により得られたもの）を配合した樹脂組成物（特開平6-192506号公報、特開平7-18151号公報）、プロピレン系樹脂に、オクテンー1含有量の比較的多いエチレンーオクテンー1共重合体（実質上メタロセン系触媒により得られたもの）を配合した樹脂組成物（国際公開94-6859号）などが開示されている。しかしながら、これらの樹脂組成物では、耐低温衝撃性は良好であるものの、低光沢性に優れた成型品を製造するのが困難であるという問題があった。

このように、自動車用内装部品の材料となるプロピレン系樹脂組成物においては、その耐衝撃性、剛性等の機械的強度と、外観性能とは相反する性能であり、これらの性能のバランスは近年向上してきているものの十分なレベルには到達していなかった。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は上記のような状況下でなされたものである。、すなわち、本発明は、耐衝撃性、剛性等の機械的性能に優れ、かつウエルド外観、低光沢性等の外観性能も良好であり、なおかつ、外観性能と機械的性能のバランスを著しく向上しうるプロピレン系樹脂組成物を提供することを目的とし、また該組成物を射出成形してなる自動車用インストルメントパネル等の自動車用内装部材を提供することを目的とするものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは鋭意研究を重ねた結果、特定の性状を有するプロピレン系樹脂に、タルクと必要に応じゴム状弾性体を所定の割合で配合した樹脂組成物により、前記本発明の目的を達成することを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

【0005】

すなわち、前記の目的を達成するためになされた本発明のプロピレン系樹脂組成物は、(A) (1) (イ) 23℃パラキシレン不溶分80～88重量%と、(ロ) 23℃パラキシレン可溶分12～22重量%とからなり、かつ(2) (イ) 成分が、アイソタクチックペンタッド分率95%以上、溶液粘弾性測定から得られる角周波数 ω_1 10⁰ /secでの緩和時間 τ が0.01～0.35秒、溶液粘弾性測定から得られる貯蔵弾性率(G')が 2×10^2 Paとなるような角周波数を ω_1 、 2×10^4 Paとなるような角周波数を ω_2 としたときの $\omega_2 / 10 \omega_1$ で表される分子量分布指数(PDI)が1～18であり、さらに(3) (ロ) 成分の極限粘度 $[\eta]$ (135℃、デカリン中)が3.3 dl/g以上、エチレン単位含有量が43重量%以下である、プロピレン系樹脂60～90重量%と、(B) ゴム状弾性体0～10重量%と、(C) タルク10～30重量%とからなる。

さらに、本発明の自動車用内装部材は、上記プロピレン系樹脂組成物を射出成形してなるものである。

【0006】

【発明の実施の形態】

本発明の樹脂組成物において、(A)成分として用いられるプロピレン系樹脂は、以下に示す性状を有する。まず、23℃パラキシレンにより分別した場合、(イ)不溶分量が78～88重量%で、(ロ)可溶分量が12～22重量%である。不溶分量が78重量%未満では成形品の耐衝撃性と剛性のバランスが不十分であり、88重量%を越えると成型品のウェルド外観および低光沢性が不十分となる。なお、23℃パラキシレンによる分別は、試料を130℃のパラキシレンに完全溶解後、23℃に冷却することにより溶解部分と非溶解部分に分別することにより行うことができる。

【0007】

上記(イ)成分は、そのアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であることが必要である。アイソタクチックペンタッド分率は、 ^{13}C -NMRスペクトルにおいてメチル炭素領域のシグナルから求められる。本発明においてはアイソタクチックペンタッド分率が95%未満の場合、耐衝撃性と剛性のバランスが不十分だけでなく、耐傷付性も不十分となる。これらの点に鑑みて、上記アイソタクチックペンタッド分率は、95%以上であることが好ましい。

【0008】

また、上記(イ)成分は、溶液粘弾性測定から得られる角周波数 ω が $10^0 / \text{sec}$ での緩和時間 τ が0.01～0.35秒の範囲内にある。緩和時間 τ が0.01秒未満では成型品の耐衝撃性と剛性のバランスが不十分であり、0.35秒を越えると成型品のウェルド外観および低光沢性が不十分となる。これらの点に鑑みて、上記緩和時間 τ が0.01～0.35秒の範囲内にあることが好ましい。なお、緩和時間 τ は測定機器としてレオメトリックス社製システム4〔回転型レオメーター、コーンプレート(25mm ϕ)、コーンアングル:0.1ラジアン〕を用い、温度175℃において角周波数 $\omega = 10^0 / \text{sec}$ で正弦的な剪断歪みを加え、貯蔵弾性率 G' と損失弾性率 G'' とから、関係式 $=G' / \omega G''$ により算出した値である。

【0009】

さらに、上記(イ)成分においては、溶融粘弾性測定から得られる貯蔵弾性率(G')が $2 \times 10^2 \text{ Pa}$ となるような角周波数を ω_1 、 $2 \times 10^4 \text{ Pa}$ となるよ

うな角周波数を ω_2 としたとき、 $\omega_2 / 10 \omega_1$ で表される分子量分布指数(PDI)が1~18である。PDIが1未満では成型品の耐衝撃性と剛性のバランスが不十分であり、18を越えると成型品のウエルド外観および低光沢性が不十分となる。これらの点に鑑みて、上記PDIは1~18であることが好ましい。なお、上記PDIは、測定機器としてレオメトリックス社製システム4〔回転型レオメーター、コーンプレート(25mm ϕ)、コーンアングル:0.1ラジアン〕を用い、温度175℃、歪30%で測定を行い求めた値である。

【0010】

本発明においては、上記(イ)成分の諸特性に加え、(ロ)成分のエチレン単位含有量が43重量%以下であることが必要である。エチレン単位含有量が43重量%を越えると耐衝撃性と剛性のバランスが不十分だけでなく、耐傷付性も不十分となる。これらの点及びウエルド外観、低光沢性等外観性能と耐衝撃性、剛性等機械的性能のバランスから、上記エチレン単位含有量は40重量%以下、さらに33~39重量%であることが好ましい。

また、(ロ)成分の極限粘度 $[\eta]$ (135℃、デカリン中)は3.3dl/g以上である。極限粘度 $[\eta]$ が3.3dl/g未満では、成型品のウエルド外観および低光沢性が不十分となる。この点に鑑みて、極限粘度 $[\eta]$ は3.3dl/g以上であることが好ましい。

【0011】

上記(A)成分のプロピレン系樹脂は、温度230℃、荷重2.16kgfの条件下で測定したメルトインデックス(MI)が1~100g/10分の範囲にあることが好ましい。このMIが1g/10分未満では流動性が低くて成形性が悪く、100g/10分を越えると成型品の耐衝撃性、剛性等の機械的性能が低下する。成形性および機械的性能のバランスの面から、上記MIは5~70g/10分、特に8~40g/10分の範囲であることが好ましい。なお、このMIはJISK7210に準拠して求めた値である。

【0012】

上記(A)成分のプロピレン系樹脂の製造方法については、前記要件を満たすプロピレン系樹脂を得ることができる方法であればいかなる方法にも使用でき、

特に制限されず、様々な方法が挙げられる。例えば、別々に重合して得られた各成分をブレンドする方法、あるいは次に示すように、

(a) (i) マグネシウム、チタン、ハロゲン原子及び電子供与体からなる固体触媒成分、及び必要に応じて用いられる (ii) 結晶性ポリオレフィンから構成される固体成分と、(b) 有機アルミニウム化合物と、通常用いられる (c) 電子供与性化合物とからなる触媒系の存在下、多段重合を行い、プロピレン-エチレンブロック共重合体を製造する方法などがある。

【0013】

上記多段重合における触媒系において、(a) 固形成分は、(i) 成分のマグネシウム、チタン、ハロゲン原子及び電子供与体からなる固体触媒成分と、必要に応じて用いられる (ii) 結晶性ポリオレフィンから構成されている。該 (i) 固体触媒成分は、マグネシウム化合物とチタン化合物と電子供与体とを接触させることによって調製することができる。なおこの場合、ハロゲン原子は、ハロゲン化合物としてマグネシウム化合物及び／又はチタン化合物などに含まれる。

【0014】

マグネシウム化合物として、金属マグネシウムとハロゲン及び／又はハロゲン含有化合物とアルコールとの反応生成物を用いることもできる。また、チタン化合物としては、公知のチタン化合物を用いることができるが、高ハロゲン含有チタン化合物、特に四塩化チタンが好適である。チタン化合物は一種だけで用いても良く、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

電子供与体としては、後で (c) 成分の電子供与性化合物として例示するものを用いることができる。該 (i) 固形触媒成分の調製は、公知の方法（特開昭53-43094 号公報、特開昭55-135102号公報、特開昭55-135103号公報、特開昭56-18606 号公報、特開昭56-166205号公報、特開昭57-63309 号公報、特開昭57-190004号公報、特開昭57-300407号公報、特開昭58-47003 号公報）を用いて行うことができる。

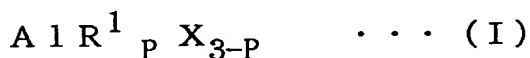
【0015】

また、(a) 固形成分の調製において必要に応じて用いられる (ii) 成分の結晶性ポリオレフィンとしては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブ

テン、ポリ4-メチル-1-ペンテンなどの炭素数2~10の α -オレフィンから得られる結晶性ポリオレフィンが挙げられる。この結晶性ポリオレフィンは、前記(i)固形触媒成分と有機アルミニウム化合物と必要に応じて用いられる電子供与性化合物とを組み合わせたものの存在下に、プロピレンを予備重合させる方法(予備重合法)等、公知の方法により得ることができる。

【0016】

次に、(b)成分として用いられる有機アルミニウム化合物としては、一般式(I)



〔式中、 R^1 は炭素数3~20のアルキル基又は炭素数6~20のアリール基、Xはハロゲン原子、Pは1~3の数を示す。〕で表される化合物を挙げることができる。

さらに、該触媒には、通常(c)成分として電子供与性化合物が用いられる。この電子供与性化合物は、酸素、窒素、リン、イオウ、ケイ素などを含有する化合物であり、基本的にはプロピレンの重合において、規則性の向上性能を有するものが考えられる。このような電子供与性化合物としては、例えば、有機ケイ素化合物、エステル類、ケトン類、エーテル類、チオエーテル類、酸無水物、酸ハライド類が好ましく用いられる。

【0017】

以上、チーグラ系(チーグラ系)の固体触媒を用いる場合について、詳しく述べたが、触媒としては近年注目されているメタロセン系の触媒を用いることもできる。本発明において、(A)成分として用いるプロピレン系樹脂は、各種の方法で得ることができるが、例えば前記した触媒系の存在下、多段重合によって製造することができる。多段重合における重合順序、及び重合段数は必要に応じ任意に選択することができる。例えば、最初の重合(第一段重合)は結晶性プロピレン系重合体を得られるようにプロピレンの単独重合又は共重合(2重量%以下のエチレンや他のオレフィンを含有する)を行い、第二段以降でエチレンとプロピレンとのランダム共重合やエチレンとプロピレンと他の α -オレフィンやポリエンとのランダム共重合を行うことができる。

【0018】

重合に際しては、触媒系を構成する各成分、すなわち (a) ~ (c) 成分を所定の割合で混合し、接触させたのち、ただちにモノマーを導入し、重合を開始してもよいし、接触後 0.2 ~ 3 時間程度熟成させたのちモノマーを導入してもよい。重合後の後処理は常法により行うことができる。本発明の樹脂組成物においては、この (A) 成分のプロピレン系樹脂は一種用いても良く、二種以上を組み合わせ用いてもよい。

本発明のプロピレン系樹脂組成物には、(B) 成分としてゴム状弾性体が用いられる。このゴム状弾性体としては、ポリブタジエン、スチレン-ブタジエン共重合体、アクリルニトリル-ブタジエン共重合体、ポリイソプレン等共役ジエン系化合物の重合体、エチレン-プロピレンランダム共重合体（エチレン・プロピレンラバー）、エチレン- α オレフィン（炭素数 4 ~ 10）ランダム共重合体を挙げることができる。特に、エチレン-プロピレンランダム共重合体（エチレン・プロピレンラバー）、エチレンと 1-オクテンをランダム共重合して得られる二元共重合ゴムを好適に用いることができる。

【0019】

更に、本発明の樹脂組成物においては、(B) 成分として、メタロセン系触媒で重合したエチレン-炭素数 3 ~ 18 の α -オレフィン共重合体が用いられる。このエチレン- α -オレフィン共重合体の密度は、 $0.850 \sim 0.875 \text{ g/cm}^3$ の範囲である。この密度が 0.850 g/cm^3 未満では成形品の剛性が不十分となり、 0.875 g/cm^3 を超えると耐衝撃性の改良効果が十分に発揮されない。剛性及び耐衝撃性などの面から、特に好ましい密度は、 $0.855 \sim 0.870 \text{ g/cm}^3$ の範囲である。また、メルトインデックス (MI) は $0.01 \sim 25 \text{ g/10分}$ の範囲である。この MI が 0.01 g/10分 未満では耐衝撃性の改良効果が十分に発揮されず、またフローマークが発生するおそれがあり、 25 g/10分 を超えるとシボ面での低光沢性及び耐衝撃性が不十分となるおそれがある。耐衝撃性、低光沢性及び成形性などの面から、好ましMIは $0.01 \sim 6 \text{ g/10分}$ の範囲であり、特に $0.01 \sim 1 \text{ g/10分}$ の範囲が好適である。なお、このMIは、温度 190°C 、荷重 2.16 kgf の条件で測定した値である。

【0020】

この共重合体のモノマーとして用いられる炭素数3～18の α -オレフィンとしては、例えばブテン-1；ペンテン-1；ヘキセン-1；オクテン-1；ノネン-1；デセン-1；ドデセン-1などの直鎖状 α -オレフィン、3-メチルブテン-1；4-メチルペンテン-1などの分岐状 α -オレフィンが挙げられるが、これらの中で、特に炭素数4～10の直鎖状 α -オレフィンが好ましい。これらの α -オレフィンは単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。また、ジエン成分、例えばジシクロペンタジエン；エチリデンノルボルネン；1，4-ヘキサジエン；1，9-デカジエン；ビニルノルボルネンなどを併用してもよい。

前記（B）成分のエチレン- α -オレフィン共重合体としては、例えば、ダウ・ケミカル日本（株）から販売されているENGAGE〔ザ・ダウ・ケミカル・カンパニー商標〕POEsがあり、これらの中から選択して用いることができる。

【0021】

また（C）成分としてタルクが用いられる。このタルクの大きさとしては、得られる成形品の剛性、耐衝撃性、耐傷付き白化性、ウエルド外観、光沢ムラなどの物性等の点から、平均粒径1～8 μ mで、平均アスペクト比が4以上のものが好適である。特に加工粉碎法により得られたものが、物性、剛性などの点でとりわけ好ましい。

本発明のプロピレン系樹脂組成物における各成分の含有割合は、（A）成分のプロピレン系樹脂が60～90重量%、（B）成分のゴム状弾性体が0～10重量%以下、（C）成分のタルクが10～30重量%である。（A）成分の含有量が60重量%未満では成形品のウエルド外観やシボ面での低光沢性が不充分であり、またフローマークが発生するなど成形性が悪く、90重量%を越えると耐衝撃性が低下する。また、（B）成分の含有量は好ましくは0～7重量%、特に好ましくは0～3重量%以下である。上記範囲を越えると成形品のウエルド外観や低光沢性が不充分である。（C）成分の含有量が10重量%未満では、インストルメントパネル等の成形品の寸法精度および剛性が不足し、30重量%を越える

と成形性および成形品のウエルド外観が不十分である。

【0022】

本発明のプロピレン系樹脂組成物においては、必要に応じ、顔料、核剤、耐候剤、酸化防止剤、耐電防止剤、難燃剤、分散剤など公知の添加剤を配合することができる。本発明のプロピレン系樹脂組成物の調製方法については特に制限はなく、例えば前記（A）成分、（C）成分及び必要に応じて用いられる（B）成分や他の添加成分を、一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、ニーダ、ロールなどを用いて熔融混練する方法等を採用できる。

本発明の自動車用内装部材は、このようにして得られたプロピレン系樹脂組成物を、射出圧縮成形法、ガス注入射出成形法などの公知の射出成形法を用いて成形することにより得ることができる。本発明において自動車用内装部材としては、例えばインストルメントパネル、ドアトリム、コンソールボックスなどがある。

【0023】

【実施例】

次に、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの例によって何ら限定されるものではない。なお成形品の物性は以下に示す方法により求めた。

（1）メルトインデックス（MI）

プロピレン系樹脂組成物について、JIS K 7 2 1 0 に準拠して求めた。

（2）アイゾット（IZOD）衝撃強度

テストピース成形品について、JIS K 7 1 1 0 に準拠して求めた。

（3）曲げ弾性率

テストピース成形品について、JIS K 7 2 0 3 に準拠して求めた。

（4）ウエルド外観

テストピース成形品について、裏面の平面を目視評価した。ウエルド部が殆ど識別できない場合を◎、ウエルド部が若干識別できるが、実用上問題ないレベルを○、ウエルド部が若干目立ち、実用上問題あるレベルを△、ウエルド部が目立つ場合を×とした。

(5) 低光沢性

テストピース成形品について、J I S K 7 1 0 5 に準拠して求めた。

(6) アイソタクチックペンタッド分率

試料 220 g を 10 φ の NMR 試料管に投入し、1, 2, 4-トリクロロベンゼン/重ベンゼン (90/10 容量%) 3 ミリリットルを加えて、140℃で均一に溶解させた後、次の条件で¹³C-NMR を測定した。周波数: 45 MHz、スペクトル幅: 25000 Hz、測定温度: 130℃、パルス幅: 8 μ秒、パルス繰り返し時間: 4 秒、積算回数: 10000 回。

【0024】

また、プロピレン系樹脂の性状は、明細書本文に記載した方法に従って測定した。

1. プロピレンブロック共重合体 (PP-1) の製造

(1) マグネシウム化合物の調製

内容積 500 リットルの攪拌翼付き付きのガラス製反応器を窒素ガスで十分に置換した後、エタノール 97.2 kg、ヨウ素 640 g 及び金属マグネシウム 6.4 kg を投入し、攪拌しながら環流条件下で反応させ、固体状反応生成物を得た。この固体状反応生成物を含む反応液を減圧下で乾燥させることにより、マグネシウム化合物 (固体生成物) を得た。

【0025】

(2) 固体触媒成分の調製

窒素ガスで十分に置換した内容積 500 リットルのガラス製三つ口フラスコに、上記 (1) で得られたマグネシウム化合物 (粉碎していないもの) 30 kg、精製ヘプタン 150 リットル、四塩化珪素 4.5 リットル及びフタル酸ジ-n-ブチル 4.3 リットル加えた。系内を 90℃に保ち、攪拌しながら四塩化チタン 144 リットルを投入して、110℃で 2 時間反応させたのち、固体成分を分離して 80℃の精製ヘプタンで洗浄した。さらに、四塩化チタン 228 リットルを加え、110℃で 2 時間反応させたのち、精製ヘプタンで十分に洗浄し、固体触媒成分を得た。

【0026】

(3) 重合前処理

内容積 500 リットルの攪拌翼付き反応槽に、精製 n -ヘプタン 230 リットルを投入し、さらに、前記 (2) で得られた固体触媒成分 25 kg を加え、次いで、この固体触媒成分中の Ti 1 モルに対し、トリエチルアルミニウムを 0.6 モル及びジシクロペンチルジメトキシシランを 0.4 モルの割合で加えた後、プロピレンをプロピレン分圧で $0.3 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ になるまで導入し、 20°C で 4 時間反応させた。反応終了後、固体触媒成分を n -ヘプタンで数回洗浄し、二酸化炭素を供給し 24 時間攪拌した。

【0027】

(4) 重合によるプロピレンブロック共重合体 (PP-1) の製造

まず、前段として内容積 200 リットルの攪拌翼付き重合槽 (第一重合槽) に、上記 (3) の処理済の固体触媒成分を Ti 原子に換算して 0.6 ミリモル/h r で、トリエチルアルミニウムを 4.0 ミリモル/kg-PP で、ジシクロペンチルジメトキシシランを 0.4 ミリモル/kg-PP でそれぞれ供給し、重合温度 85°C 、重合圧力 (全圧) $28 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ でプロピレンを反応させた。この時、所望のエチレン含有量及び分子量になるようにエチレン供給量及び水素供給量を調整した。

次に、第一重合槽から連続的にパウダーを抜き出し、内容積 200 リットルの攪拌翼付き重合槽 (第二重合槽) に移送した。第二重合槽では、重合温度 70°C 、重合圧力 (全圧) $15 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ にて運転し、所望の組成及び分子量になるようにプロピレン、エチレン及び水素供給量比を調整した。連続的に抜き出したパウダーを造粒し、プロピレンブロック共重合体 (PP-1) を得た。

【0028】

2. プロピレンブロック共重合体 (PP-2) ~ (PP-9) の製造

上記 1. の PP-1 において、下記第 1 表に示す配合とする以外は、上記 1. の PP-1 の製造方法に準じてプロピレンブロック共重合体 (PP-2) ~ (PP-9) を得た。

【0029】

実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 ~ 5

第1表-1及び2に示す性状と量（（A）～（C）成分は、（A）～（C）成分の合計量を100重量%としたときの各成分の重量%を示し、（イ）及び（ロ）成分は、（イ）及び（ロ）成分の合計量を100重量%としたときの各成分の重量%を示す。）の（A）プロピレン系樹脂、（B）ゴム状弾性体、（C）タルクの合計量100重量部に対し、ダークグレー顔料（大日精化社製、商品名：P P-DHH7343）1.0重量部を配合し、二軸混練機で混練して成形材料を調製したのち、射出成形機により樹脂温度220℃で成形して、テストピース（140×140×3mmの内装用シボ付き板）を作成し、物性及び外観性能を評価した。結果を第1表-2に示す。

【0030】

【表1】

第1表-1

		プロピレン系樹脂								
		種類	重量 %	(i)23℃ヘキサン不溶分				(ii)23℃ヘキサン可溶分		
				重量 %	アイソタクト ベクトル 分率(%)	τ 秒	PDI	重量 %	エチレン 含有量 (重量%)	極限粘度 [η] (dl/g)
実 施 例	1	PP-1	75	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8
	2	PP-2	73	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8
	3	PP-3	69	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8
	4	PP-4	83	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8
比 較 例	1	PP-5	73	83	97.6	0.14	10	17	48	3.8
	2	PP-6	73	84	97.7	0.11	10	16	37	2.8
	3	PP-7	73	83	97.5	0.14	10	17	47	2.9
	4	PP-8	73	83	97.7	0.14	10	17	56	2.1
	5	PP-9	73	90	97.3	0.11	10	10	42	2.9

【0031】

【表 2】

第1表-2

		(B) ゴム状 弾性体		(C) タルク	テストピース物性			テストピース 外観性能	
		種類	重量 %	重量%	MI (g/10 分)	IZOD 衝撃強度 (kJ/m ²)	曲げ弾 性率 (MPa)	ウエル ド外観	低光沢性 (%)
実 施 例	1	メタロセン LL	2	23	13	32	2980	◎	2.1
	2	メタロセン LL	4	23	11	58	2660	○—◎	2.1
	3	メタロセン LL	8	23	8	NB	2460	○	2.2
	4	メタロセン LL	2	15	12	46	2300	◎	2.1
比 較 例	1	メタロセン LL	4	23	10	28	2740	◎	2.1
	2	メタロセン LL	4	23	14	33	2650	△	2.4
	3	メタロセン LL	4	23	14	26	2730	△—○	2.2
	4	メタロセン LL	4	23	12	NB	2530	×	2.9
	5	メタロセン LL	4	23	13	22	2950	×	2.5

(注)

メタロセン LL : (EG-8100、ザ・ダウ・ケミカル・カンパニー)

タルク : 浅田製粉社製、商品名 : JM209、平均粒径4.2 μm (レーザー式粒度分析計で測定 [島津製作所 SALD2000A])

【0032】

【発明の効果】

本発明のプロピレン系樹脂組成物は、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好で、耐衝撃性、剛性の機械的性能に優れており、外観性能と機械的性能という相反する性能をお互いに損なうことなくバランスよく向上している。また、この樹脂組成物は、無塗装化が可能でコストダウンを図ることができ、自動車用内装部材の成形材料として最適である。

本発明の樹脂組成物から得られた自動車用内装部材は、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好で、無塗装化が可能でコストダウンを図ることができ、耐

特平 1 1 - 0 6 3 3 9 8

衝撃性、剛性の機械的性能に優れており、外観性能と機械的性能という相反する性能をお互いに損なうことなくバランスよく向上している。このため、例えばインストルメントパネル等の自動車用内装部材として最適である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好で、耐衝撃性、剛性等の機械的性能に優れ、外観性能と機械的性能のバランスを向上したプロピレン系樹脂組成物及びそれを用いた自動車用内装部材を提供する。

【解決手段】 (A) (1) (イ) 23℃パラキシレン不溶分80～88重量%と、(ロ) 23℃パラキシレン可溶分12～22重量%とからなり、かつ(2) (イ) 成分が、アイソタクチックペンタッド分率95%以上、溶液粘弾性測定から得られる角周波数 ω 10⁰ /secでの緩和時間 τ が0.01～0.35秒、溶液粘弾性測定から得られる貯蔵弾性率(G')が 2×10^2 Paとなるような角周波数を ω_1 、 2×10^4 Paとなるような角周波数を ω_2 としたときの $\omega_2 / 10 \omega_1$ で表される分子量分布指数(PDI)が1～18であり、さらに(3) (ロ) 成分の極限粘度 $[\eta]$ (135℃、デカリン中)が3.3 dl/g以上、エチレン単位含有量が43重量%以下である、プロピレン系樹脂60～90重量%と、(B) ゴム状弾性体0～10重量%と、(C) タルク10～30重量%とを含有するプロピレン系樹脂組成物、並びに、この樹脂組成物を射出成形してなる自動車用内装部材。

【選択図】 なし

特平 11-063398

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000183657]

1. 変更年月日 1995年 5月 1日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都港区芝五丁目6番1号

氏 名 出光石油化学株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005326]

1. 変更年月日	1990年 9月 6日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都港区南青山二丁目1番1号
氏 名	本田技研工業株式会社

THIS PAGE BLANK (USPTO)